

PAT-NO: JP02000128648A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2000128648 A

TITLE: PRODUCTION OF SINTERED BODY

PUBN-DATE: May 9, 2000

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
MIYAKE, SHOTARO	N/A
KUBOTA, YUKIO	N/A
HIRAIDE, TSUNEO	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
ASAHI OPTICAL CO LTD	N/A

APPL-NO: JP10302888

APPL-DATE: October 23, 1998

INT-CL (IPC): C04B035/64, B28B003/00

ABSTRACT:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for producing a sintered body, enabling the production of the homogeneous sintered article hardly having sintering defects on the discharge plasma sintering.

**SOLUTION:** This method for producing a sintered body comprises preparing a powder material such as ceramic powder as a raw material, isotropically adding a pressure to the powder material by a method such as a hydrostatic pressurization method (CIP, HIP) to pressure-compact the powder material, applying a mechanical processing such as a cutting processing, a grinding processing or a polishing processing to the pressurized powder article to arrange the shape or dimension, and subsequently sintering the processed powder article by a discharge plasma sintering method to obtain the sintered body. The discharge plasma sintering is carried out by filling the pressurized powder in a molding die, pressurizing the filled powder with a pair of molding punches and simultaneously applying electric pulses to the filled material. Therein, it is preferable that a heat-insulating material is placed between the pressurized powder material and both the molding punches.

COPYRIGHT: (C)2000,JPO

**BEST AVAILABLE COPY**

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-128648

(P2000-128648A)

(43)公開日 平成12年5月9日(2000.5.9)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード*(参考)
C 0 4 B 35/64		C 0 4 B 35/64	E 4 G 0 5 4
B 2 8 B 3/00	1 0 2	B 2 8 B 3/00	1 0 2
		C 0 4 B 35/64	L

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 9 頁)

(21)出願番号 特願平10-302888

(22)出願日 平成10年10月23日(1998.10.23)

(71)出願人 000000527

旭光学工業株式会社

東京都板橋区前野町2丁目36番9号

(72)発明者 三宅 正太郎

東京都板橋区前野町2丁目36番9号 旭光学工業株式会社内

(72)発明者 久保田 幸雄

東京都板橋区前野町2丁目36番9号 旭光学工業株式会社内

(74)代理人 100091292

弁理士 増田 達哉 (外1名)

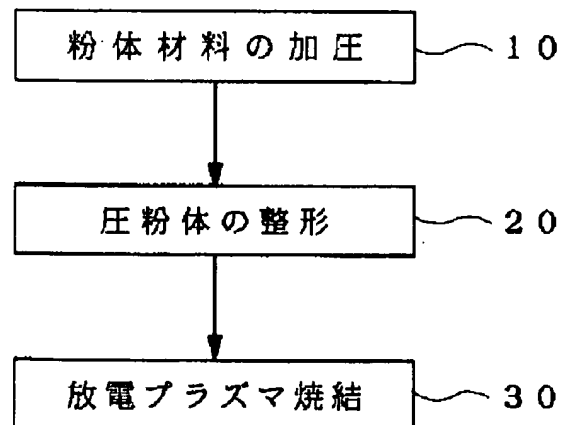
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 焼結体の製造方法

(57)【要約】

【課題】放電プラズマ焼結において、均質で焼結欠陥の少ない焼結体を製造することができる焼結体の製造方法を提供すること。

【解決手段】まず、原料となる粉体材料、例えばセラミックス粉体を用意し、この粉体材料に対し、例えば静水圧加圧(CIP、HIP)のような方法で等方的に圧力を加え、圧密化する。次に、得られた圧粉体に対し、例えば切削加工、研削加工、研磨加工等の機械加工を施して、その形状または寸法を整える。次に、圧粉体を放電プラズマ焼結により焼結し、焼結体を得る。放電プラズマ焼結は、成形ダイに圧粉体を充填し、一對の成形パンチで加圧しながらパルス通電を行うことにより焼結する。この場合、圧粉体と両成形パンチとの間にそれぞれ断熱材を介在させるのが好ましい。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 粉体材料を等方的に加圧して圧粉体を製造する工程と、  
前記圧粉体を放電プラズマ焼結法により焼結し、焼結体を得る工程とを有することを特徴とする焼結体の製造方法。

【請求項2】 粉体材料を等方的に加圧して圧粉体を製造する工程と、  
前記圧粉体の形状または寸法を整える工程と、  
整形された圧粉体を放電プラズマ焼結法により焼結し、  
焼結体を得る工程とを有することを特徴とする焼結体の製造方法。

【請求項3】 前記粉体材料の加圧は、静水圧加圧により行われる請求項1または2に記載の焼結体の製造方法。

【請求項4】 前記静水圧加圧は、常温または常温付近の温度で行われる請求項3に記載の焼結体の製造方法。

【請求項5】 前記加圧の圧力は、0.1～20tf/cm<sup>2</sup>である請求項1ないし4のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【請求項6】 前記焼結は、圧粉体を型内に収納し、一対のパンチで加圧しながらパルス通電することにより行われる請求項1ないし5のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【請求項7】 前記焼結は、圧粉体に断熱材を接触させた状態で行われる請求項1ないし6のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【請求項8】 前記焼結は、前記圧粉体と前記パンチとの間に断熱材を介在させた状態で行われる請求項6に記載の焼結体の製造方法。

【請求項9】 前記断熱材は、非導電性物質からなるものである請求項7または8に記載の焼結体の製造方法。

【請求項10】 前記断熱材は、平均粒径が0.05～200μmの粉体である請求項7ないし9のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【請求項11】 前記粉体材料は、酸化物系セラミックスまたは窒化物系セラミックスである請求項1ないし10のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【請求項12】 前記粉体材料の平均粒径は、0.1～200μmである請求項1ないし11のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明が属する技術分野】本発明は、放電プラズマ焼結法により製造される焼結体の製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】放電プラズマ焼結法は、粉体材料の粒子間隙に直接パルス状の電気エネルギーを投入し、火花放電により瞬時に発生する高温プラズマの高エネルギーを

熱拡散・電解拡散等へ効果的に応用することで、昇温・保持時間を含め5～20分程度で焼結あるいは焼結接合を可能とする技術である。このような放電プラズマ焼結法によれば、これまで焼結が困難とされていた材料や異種材料からなる複合材料等の焼結体を短時間でかつ高品位に得ることができる。

【0003】従来の放電プラズマ焼結法は、図4にその要部を示すように、導電性カーボン製の成形ダイ100と、成形ダイ100に嵌入される1対の導電性カーボン製の成形パンチ200を配設し、成形ダイ100内に粉体材料（被焼結材料）400を充填し、成形パンチ200で圧縮した後パルス状の電流を通電することにより焼結体を形成するものである。

【0004】しかしながら、成形パンチ200で粉体材料400を圧縮する際、粉体材料400全体を均一に圧縮することができず、粉体材料400の中央部分に疎の部分が生じ易く、そのため、得られた焼結体の密度にも同様の分布が生じてしまう。特に、成形パンチ200の押圧方向の長さが長い焼結体（長尺物）を製造する場合

には、このような焼結体の密度のバラツキがより顕著となる傾向がある。

【0005】そして、このような密度が不均一な焼結体は、その内部応力のためにクラック（割れ）、欠損等の焼結欠陥を生じ易い。

【0006】また、放電プラズマ焼結の際、パルス電流は成形パンチ200から成形ダイ100に流れ、成形ダイ100を発熱させる。この発熱が被焼結材料400の保温に寄与するが、急速昇温を行うために比較的大きな電流を印加した場合、成形パンチ200の径が成形ダイ100と比較して極端に小さいと、成形パンチ200に電流が集中してこれを過熱し、成形パンチ200の押圧面付近の粉体材料400が中心部に比べて高温になり、部分的に温度差が生じる。特に、成形パンチ200の押圧方向の長さが長い焼結体（長尺物）を製造する場合には、このような温度分布のバラツキがより顕著となる傾向がある。

【0007】そして、焼結体の高温に加熱された部分は他所より高密度化するため、焼結体の密度は不均一となり、その結果、前記と同様に、焼結欠陥を生じ易くなる。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、放電プラズマ焼結において、均質で焼結欠陥の少ない焼結体を製造することができる焼結体の製造方法を提供することにある。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】このような目的は、下記（1）～（12）の本発明により達成される。

【0010】（1） 粉体材料を等方的に加圧して圧粉体を製造する工程と、前記圧粉体を放電プラズマ焼結法

により焼結し、焼結体を得る工程とを有することを特徴とする焼結体の製造方法。

【0011】(2) 粉体材料を等方的に加圧して圧粉体を製造する工程と、前記圧粉体の形状または寸法を整える工程と、整形された圧粉体を放電プラズマ焼結法により焼結し、焼結体を得る工程とを有することを特徴とする焼結体の製造方法。

【0012】(3) 前記粉体材料の加圧は、静水圧加圧により行われる上記(1)または(2)に記載の焼結体の製造方法。

【0013】(4) 前記静水圧加圧は、常温または常温付近の温度で行われる上記(3)に記載の焼結体の製造方法。

【0014】(5) 前記加圧の圧力は、0.1~20 tf/cm<sup>2</sup>である上記(1)ないし(4)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0015】(6) 前記焼結は、圧粉体を型内に収納し、一對のパンチで加圧しながらパルス通電することにより行われる上記(1)ないし(5)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0016】(7) 前記焼結は、圧粉体に断熱材を接触させた状態で行われる上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0017】(8) 前記焼結は、前記圧粉体と前記パンチとの間に断熱材を介在させた状態で行われる上記(6)に記載の焼結体の製造方法。

【0018】(9) 前記断熱材は、非導電性物質からなるものである上記(7)または(8)に記載の焼結体の製造方法。

【0019】(10) 前記断熱材は、平均粒径が0.05~200 μmの粉体である上記(7)ないし(9)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0020】(11) 前記粉体材料は、酸化物系セラミックスまたは窒化物系セラミックスである上記(1)ないし(10)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0021】(12) 前記粉体材料の平均粒径は、0.1~200 μmである上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の焼結体の製造方法。

【0022】

【発明の実施の形態】以下、本発明の焼結体の製造方法を添付図面に示す好適実施形態に基づいて詳細に説明する。

【0023】図1は、本発明の焼結体の製造方法の実施形態を示す工程図、図2は、本発明において放電プラズマ焼結に用いられる放電プラズマ焼結用型の主要部の一例を示す縦断面図、図3は、本発明に用いられる放電プラズマ焼結装置の構成例を示す概略図である。

【0024】図1に示すように、本実施形態の焼結体の製造方法は、粉体材料の加圧工程10、圧粉体の整形工程20および放電プラズマ焼結工程30を有している。

以下、各工程について詳述する。

【0025】[1] 粉体材料の加圧(圧粉体の製造)

まず、原料となる粉体材料を用意する。粉体材料としては、いかなる組成のものでもよく、例えば、Feまたは例えばSUS304、SUS316、SUS317、SUS318、SUS410、SUS430等のステンレス鋼に代表されるFe系合金材料、CuまたはCu系合金、AlまたはAl系合金、TiまたはTi系合金等の非鉄金属系材料等、その他の殆どの金属材料が挙げられる。さらに、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、SiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>等の酸化物系セラミックス、SiC等の炭化物系セラミックス、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>、AlN、TiN、Ta<sub>2</sub>N、BN等の窒化物系セラミックス、TiB<sub>2</sub>等の硼化物系セラミックス、LiF等のフッ化物系セラミックス、ハイドロキシアパタイト等のリン酸カルシウム系セラミックス等の各種セラミックス系材料、サーメット系化合物材料、金属間化合物系材料、有機系材料等が挙げられ、これらを1種または2種以上を混合して用いることができ、あるいは傾斜材料とすることもできる。

【0026】粉体材料の粒径は特に限定されないが、平均粒径が0.1~200 μmであるのが好ましく、5~50 μmであるのがより好ましい。この平均粒径が小さすぎると、凝集が起り、取り扱いが難しいものとなり、また大きすぎると、圧粉体の作製が難しいものとなる。

【0027】また、粉体材料の形態としては、粉体そのもののみならず、コンパウンド、ペースト状、スラリー状、ペレット状等、いかなる形態であってもよい。

【0028】このような粉体材料(またはこれを予め所望の形状に圧粉成形したもの)に対し、圧力を加え、圧密化する。

【0029】加圧の方法としては、加圧後の圧粉体に密度を均一とするために、例えば静水圧加圧のような成形体に対し等方的に加圧する方法が好ましく、特に静水圧加圧が好ましい。以下、この静水圧加圧について説明する。

【0030】静水圧加圧としては、常温または常温付近の温度(例えば5~65℃)で加圧されるCIP(Cold Isostatic press)と、加熱下(例えば65℃以上)で加圧されるHIP(Hot Isostatic press)とがあるが、設備が簡素なことや、後述する被膜に耐熱性を要求されないこと等から、前者が好ましい。

【0031】静水圧加圧の具体的な方法としては、粉体材料の表面を液体遮断性のある被膜(図示せず)で覆い、これを静水圧加圧装置に装填し、静水圧加圧を施す。CIPの場合、被膜としては、例えば、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン等の樹脂材料や、天然ゴム、イソプレンゴムのようなゴム材料を用いることができる。この被膜は、例えばディッピングや真空バッキング法により形成することができる。

【0032】静水圧加圧（等方的加圧）の圧力は、特に限定されないが、0.1～20tf/cm<sup>2</sup>程度であるのが好ましく、2～6tf/cm<sup>2</sup>程度であるのがより好ましい。この圧力が低過ぎると、十分な加圧の効果（特に密度の均一化）が期待できない場合があり、また、圧力を前記上限値よりさらに高くしても、効果の向上が見られず、また、大型の装置が必要となり設備が高価になる。

【0033】このようにして得られた加圧後の圧粉体は、高密度となり、しかもその密度が均一となる。従って、放電プラズマ焼結法により焼結した際、収縮率が減少するとともに均一に収縮するため、最終的に得られた焼結体の寸法精度が高く、また、焼結体の密度が均一となり、クラックや欠損等の焼結欠陥の発生が抑制される。

【0034】なお、加圧後、表面の被膜は、所定の方法により除去される。

【0035】以上のように、焼結前に予め粉体材料を加圧し圧粉体としておくことで、放電プラズマ焼結の焼結性が向上し、得られた焼結体の密度が高密度かつ均一となる。その結果、均質で高品質の焼結体を得られる。このような効果は、焼結体が長尺物の場合に、特に有効である。

#### 【0036】〔2〕圧粉体の整形

前記工程〔1〕で得られた圧粉体に対し、必要に応じ、その形状または寸法を整える。この圧粉体の整形は、例えば、圧粉体に所定の機械加工を施すことにより行われる。機械加工としては、例えば、切削加工、研削加工、研磨加工等が挙げられ、これらのうちの1種または2種以上を組み合わせて行うことができる。

【0037】前記工程〔1〕では、製造される圧粉体が後述する成形ダイ1の内部に収納可能であり、かつなるべく隙間なく収納されるような形状、寸法となるように加圧されるのが好ましいが、これに反した場合でも、圧粉体の整形によりこのような形状、寸法とすることができる。

【0038】また、長尺物の焼結体を得るために、圧粉体をそれに応じた形状、寸法に整形することもできる。例えば、1つの大きな圧粉体を複数に分割し、分割された圧粉体のそれぞれを以下の焼結工程に供することもできる。

【0039】なお、圧粉体自体は、焼結後の焼結体に比べてその硬度がはるかに低いため、機械加工等による圧粉体の整形は、容易に行うことができ、特に、低硬度の工具を用いても行うことができ、また、機械加工の加工速度も速い。

#### 【0040】〔3〕放電プラズマ焼結

以上のようにして得られた圧粉体は、放電プラズマ焼結法により焼結され、焼結体とされる。この焼結は、例えば図3に示す放電プラズマ焼結装置を用いて行われる。

【0041】本工程の放電プラズマ焼結は、成形ダイ1

に充填された圧粉体（被焼結材料）4を一对の成形パンチ2で加圧しながらパルス通電を行うことにより焼結体を製造する。この場合、圧粉体4と両成形パンチ2との間にそれぞれ断熱材3を介在させるのが好ましい。

【0042】図2に示すように、成形ダイ1は、材料装入部11を有する筒形状であって、両端に摺動可能に嵌合される1対の成形パンチ2が配置される。

【0043】成形ダイ1および成形パンチ2の構成材料としては、例えば超硬金属、超硬合金、炭素系材料（黒鉛、ガラス状カーボン等）等の導電性材料が用いられる。

【0044】成形ダイ1の内周面および成形パンチ2の押圧面は、いずれもカーボンシート5で被覆されている。これにより成形パンチ2を成形ダイ1の内周に食いつくことなく円滑に摺動させることができる。また、圧粉体4中に金属材料が含まれる場合、かかる金属が成形ダイ1あるいは成形パンチ2に含まれるカーボンと反応するおそれがあるため、カーボンシート5を介在させることにより、前記金属材料が内壁面に固着すること等を防止することができる。

【0045】このような成形ダイ1の材料装入部11には、圧粉体4が充填されるが、圧粉体4と両成形パンチ2との間には、断熱材3を介在させるのが好ましい。この断熱材3の設置により、電流の集中により過熱した成形パンチ2からの熱の拡散が遮断され、圧粉体4の局所的な加熱および高温化が防止される。その結果、圧粉体4の温度が均一化され、均質で高品質の焼結体を得ることができる。

【0046】断熱材3は、非導電性物質であることが好ましい。電流は非導電性物質内を殆ど流れないため、断熱材3と圧粉体4との接触面付近が過熱されるおそれがない。

【0047】断熱材3の構成材料としては耐熱性を有するものが好ましく、圧粉体4を構成する粉体材料との関係で、適宜選択される。例えば、断熱材3の構成材料として、圧粉体4の焼結温度で焼結しない難焼結性物質を用いることができる。

【0048】このような断熱材3としては、例えば酸化物系セラミックス、窒化物系セラミックス、炭化物系セラミックス、フッ化物系セラミックス等の各種セラミックス、サーメット等が挙げられ、これらを1種または2種以上を混合したものを用いることができるが、なかでも酸化物系セラミックスおよび窒化物系セラミックスのうちいずれか一方を主とするものがより好ましい。

【0049】これらの材料は、高温下でも容易に分解したり、ガス化または炭化することが殆どなく、圧粉体4の焼結を阻害しない。また、成形ダイ1や成形パンチ2に溶着しないため取扱性にも優れる。

【0050】酸化物系セラミックスとしては、例えばAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>等が挙げられるがAl<sub>2</sub>

$\text{O}_3$  が特に好ましい。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  は融点が高く、また、熱的に安定で電気絶縁抵抗が高く断熱材の材料として優れている。さらに酸・アルカリに安定であるため焼結体の形成に悪影響を及ぼすおそれがない。

【0051】窒化物系セラミックスとしては、BN、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{AlN}$ 、 $\text{TiN}$ 等が挙げられるが、前記 $\text{Al}_2\text{O}_3$ と同様の理由から、BNが好ましい。

【0052】断熱材3の形態としては特に限定されず、粉体、ブロック体、それらの混合体等が挙げられるが、粉体であることが好ましい。粉体は、成形ダイ1内への装填・取り出しが容易で、かつ装填量の調節も簡単であるからである。また、粉体は、粉体間に空気を含むことによって断熱作用がより一層効果的に発揮される。

【0053】また、断熱材3は、ブロック体であってもよい。ブロック体とすることにより、断熱材3の圧粉体4への混入等を効果的に防止することができる。

【0054】粉体による断熱材3の場合、かかる粉体の平均粒径は0.05~200 $\mu\text{m}$ であることが好ましく、0.1~100 $\mu\text{m}$ であることがより好ましい。さらに、粒径が適度に大きい方が断熱材としての断熱効果が優れるという点で、かかる粉体の平均粒径は、50~80 $\mu\text{m}$ であるのが好ましい。このような平均粒径の粉体を用いることにより、断熱効果がより有効に発揮され、かつ取扱性も良好である。

【0055】断熱材3の成形ダイ1内への装填量は特に限定されず、焼結温度や圧粉体4の性質等により適宜設定することができるが、必要かつ十分な断熱効果を得ることができる量として、圧粉体4の重量に対し8~70%程度とすることが好ましく、15~50%程度とするのがより好ましい。

【0056】断熱材3は、図2に示すように、圧粉体4と上下(両端)の成形パンチ2との間に各々介在させてもよく、あるいは圧粉体4の片側にのみ介在させてもよいが、前者の方がより好ましい。その場合、圧粉体4の重量に対し8~70%程度に相当する量の断熱材3は、ほぼ等分に分配されていることが好ましい。

【0057】断熱材3と圧粉体4との間にはカーボンシート5が挟まれている。これにより断熱材3と圧粉体4との溶着等の相互作用を防止し、焼結後、断熱材3を容易に取り出すことができる。

【0058】放電プラズマ焼結は、成形ダイ1に断熱材3および圧粉体4を入れて成形パンチ2で挟み、図3に示すような放電プラズマ焼結装置7にセットして行う。

【0059】放電プラズマ焼結装置7は、真空チャンバー76と、上下一対の加圧ラム74、75と、パルス電圧を発生させる焼結用電源72と、加圧ラム74、75を昇降駆動する油圧式の加圧駆動機構73と、これらを制御する制御部71とを有している。

【0060】断熱材3および圧粉体4を入れた成形ダイ1は、真空チャンバー76内の加圧ラム74、75間に

セットされる。

【0061】真空チャンバー76内は、真空ポンプ77により脱気され、真空状態(減圧状態)とされる。放電プラズマ焼結は、空気中の酸素、窒素、水等が圧粉体4に含まれる金属粉末等と反応し焼結体に好ましくない影響を及ぼすおそれがあるため、予め真空チャンバー76内を真空状態(減圧状態)として焼結を行うのが好ましい。あるいは、真空チャンバー76内を不活性ガス雰囲気として焼結を行うことが好ましい。

10 【0062】制御部71は、成形ダイ1に設置された図示しない温度センサー(熱電対)により検出される材料温度が予め設定された昇温曲線に一致するように焼結用電源72の出力を制御する。また、制御部71は、加圧駆動機構73および真空ポンプ77の駆動を制御する。

【0063】上下一対の成形パンチ2は、各々加圧ラム74および75に固定されており、加圧ラム74、75内に設けられた給電端子(図示せず)により焼結用電源72と電気的に接続されている。

20 【0064】加圧駆動機構73の作動により、加圧ラム74、75を互いに接近する方向に移動し、これらに固定された成形パンチ2で圧粉体4を圧縮する。

【0065】圧粉体4の圧縮時の加圧力は特に限定されないが、80~2000 $\text{kgf/cm}^2$ 程度が好ましく、300~500 $\text{kgf/cm}^2$ 程度がより好ましい。

【0066】この圧粉体4の圧縮によりさらに高密度に圧縮された圧粉体4に対し、成形パンチ2を通して、パルス電圧を印可しパルス電流を通電し焼結する。

30 【0067】印加するパルス電圧の条件は、特に限定されず、例えば、パルス比(非通電時間:通電時間)が1:1~12:1程度、電圧1~10V程度とすることができる。

【0068】焼結温度は、圧粉体4の組成等に応じて適宜設定されるが、300~1500℃程度が好ましく、800~1100℃程度がより好ましい。かかる温度での保持時間は2~30分程度が好ましく、3~10分程度がより好ましい。

【0069】以上、本発明の焼結体の製造方法を図示の実施形態について説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば成形ダイ1の材料装入部11および成形ダイ1に嵌入する成形パンチ2の断面形状は、焼結体の形状に応じて任意に選択することが可能であり、円形、楕円形、環形状、多角形等いかなる形状であってもよい。

【0070】

【実施例】次に、本発明の具体的実施例について説明する。

50 【0071】(実施例1)粉体材料として、大気炉で700℃焼成した球状ハイドロキシアパタイト(平均粒径:40 $\mu\text{m}$ )6.0gを用意し、この粉体材料を静水圧プレス(CIP)により、温度30℃、圧力2tf/cm

2で等方的に加圧して圧粉体を得た。

【0072】なお、静水圧プレスに際しては、粉体材料をポリ塩化ビニル製の被膜で覆った。

【0073】次に、図2に示すように、得られた圧粉体4を導電性カーボン製の成形ダイ1（内径10.5mm）に充填し、その両端に断熱材3としてアルミナ（ $Al_2O_3$ ）粉体（平均粒径0.15 $\mu m$ ）を各々1.0gずつ（計2.0g）入れ、これらを挟むように一對の導電性カーボン製の成形パンチ2を設置した。

【0074】このとき、成形ダイ1の内周面および成形パンチ2の押圧面をカーボンシート5で被覆し、断熱材3と圧粉体4との間にもカーボンシート5を挟んだ。

【0075】次に、成形ダイ1および成形パンチ2を図2に示すような放電プラズマ焼結装置（住友石炭鉱業（株）製SPS-510L）にセットし、真空中にて上下から圧力400kgf/cm<sup>2</sup>で加圧し、パルス電圧（パルス条件は12:2）を印加して圧縮通電系を加熱し、焼結温度1050℃、保持時間10分で焼結した。

【0076】得られた焼結体の形状は、直径10.1mm×長さ23.0mmの棒状（円柱状）であった。

【0077】（実施例2）静水圧プレス（CIP）の条件を、温度40℃、圧力4tf/cm<sup>2</sup>とした以外は実施例1と同様にして、焼結体を製造した。

【0078】（実施例3）静水圧プレス（CIP）の条件を、温度40℃、圧力6tf/cm<sup>2</sup>とした以外は実施例1と同様にして、焼結体を製造した。

【0079】（実施例4）粉体材料として、大気炉で700℃焼成した球状ハイドロキシアパタイト（平均粒径：10 $\mu m$ ）6.0gを用意し、この粉体材料を静水圧プレス（CIP）により、温度30℃、圧力2tf/cm<sup>2</sup>で等方的に加圧して圧粉体を得た。

【0080】なお、静水圧プレスに際しては、粉体材料をポリ塩化ビニル製の被膜で覆った。

【0081】次に、図2に示すように、得られた圧粉体4を導電性カーボン製の成形ダイ1に充填し、その両端に断熱材3としてアルミナ（ $Al_2O_3$ ）粉体（平均粒径60 $\mu m$ ）を各々1.0gずつ（計2.0g）入れ、これらを挟むように一對の導電性カーボン製の成形パンチ2を設置した。

【0082】このとき、成形ダイ1の内周面および成形パンチ2の押圧面をカーボンシート5で被覆し、断熱材3と圧粉体4との間にもカーボンシート5を挟んだ。

【0083】次に、成形ダイ1および成形パンチ2を図2に示すような放電プラズマ焼結装置（住友石炭鉱業（株）製SPS-510L）にセットし、真空中にて上下から圧力350kgf/cm<sup>2</sup>で加圧し、パルス電圧（パルス条件は12:2）を印加して圧縮通電系を加熱し、焼結温度1100℃、保持時間5分で焼結した。

【0084】（実施例5）静水圧プレス（CIP）の条件を、温度40℃、圧力4tf/cm<sup>2</sup>とした以外は実施例

4と同様にして、焼結体を製造した。

【0085】（実施例6）静水圧プレス（CIP）の条件を、温度40℃、圧力6tf/cm<sup>2</sup>とした以外は実施例4と同様にして、焼結体を製造した。

【0086】（実施例7）断熱材を用いない以外は実施例3と同様にして、焼結体を製造した。

【0087】（比較例1）粉体材料として、大気炉で700℃焼成した球状ハイドロキシアパタイト（平均粒径：40 $\mu m$ ）6.0gを用意した。

【0088】次に、図4に示すように、該粉体材料400を導電性カーボン製の成形ダイ100に充填し、これを挟むように一對の導電性カーボン製の成形パンチ200を設置した。

【0089】次に、成形ダイ100および成形パンチ200を放電プラズマ焼結装置（住友石炭鉱業（株）製SPS-510L）にセットし、真空中にて上下から圧力400kgf/cm<sup>2</sup>で加圧し、パルス電圧（パルス条件は12:2）を印加して圧縮通電系を加熱し、焼結温度1050℃、保持時間10分で焼結した。

【0090】（比較例2）粉体材料として、大気炉で700℃焼成した球状ハイドロキシアパタイト（平均粒径：10 $\mu m$ ）6.0gを用意した。

【0091】次に、図4に示すように、該粉体材料400を導電性カーボン製の成形ダイ100に充填し、これを挟むように一對の導電性カーボン製の成形パンチ200を設置した。

【0092】次に、成形ダイ100および成形パンチ200を放電プラズマ焼結装置（住友石炭鉱業（株）製SPS-510L）にセットし、真空中にて上下から圧力350kgf/cm<sup>2</sup>で加圧し、パルス電圧（パルス条件は12:2）を印加して圧縮通電系を加熱し、焼結温度1100℃、保持時間5分で焼結した。

【0093】実施例1～6および比較例1、2における粉体材料、断熱材、粉体材料の加圧条件、焼結条件を下記表1および表2にまとめて示す。

【0094】＜焼結体の焼結状態の評価＞実施例1～7および比較例1、2で得られた焼結体（各20個）の表面および切断面（5箇所）を目視観察し、その焼結状態を評価した。

【0095】この評価は、4段階とした。すなわち、焼結体において、高密度化によるハイドロキシアパタイトの透明化が均一に認められた場合、もしくは透明化が全く認められない場合（焼結体が全体として均質なものである場合）を評価Aとし、それとは逆に、部分的な透明化が認められ、不均一であり、またクラック等の焼結欠陥が認められた場合を評価Dとし、それらの間を2段階に分け、評価Aに近いものを評価B、評価Dに近いものを評価Cとした。

【0096】評価結果を下記表1および表2に示す。

【0097】

【表1】

表 1

	粉体材料	断熱材	静水圧プレス条件		焼結条件			焼結状態 の評価
			温度 [℃]	圧力 [tf/cm <sup>2</sup> ]	温度 [℃]	圧力 [kgf/cm <sup>2</sup> ]	保持時間 [分]	
実施例1	ハイドロキシアパタイト 平均粒径40μm	アルミナ粉体 平均粒径0.15μm	30	2	1050	400	10	A
実施例2	ハイドロキシアパタイト 平均粒径40μm	アルミナ粉体 平均粒径0.15μm	40	4	1050	400	10	A
実施例3	ハイドロキシアパタイト 平均粒径40μm	アルミナ粉体 平均粒径0.15μm	40	6	1050	400	10	A
実施例4	ハイドロキシアパタイト 平均粒径10μm	アルミナ粉体 平均粒径60μm	30	2	1100	350	5	A

表2へ続く

【0098】

\* \* 【表2】

表 2

	粉体材料	断熱材	静水圧プレス条件		焼結条件			焼結状態 の評価
			温度 [℃]	圧力 [tf/cm <sup>2</sup> ]	温度 [℃]	圧力 [kgf/cm <sup>2</sup> ]	保持時間 [分]	
実施例5	ハイドロキシアパタイト 平均粒径10μm	アルミナ粉体 平均粒径60μm	40	4	1100	350	5	A
実施例6	ハイドロキシアパタイト 平均粒径10μm	アルミナ粉体 平均粒径60μm	40	6	1100	350	5	A
実施例7	ハイドロキシアパタイト 平均粒径40μm	なし	40	6	1050	400	10	B
比較例1	ハイドロキシアパタイト 平均粒径40μm	なし	静水圧プレスせず		1050	400	10	D
比較例2	ハイドロキシアパタイト 平均粒径10μm	なし	静水圧プレスせず		1100	350	5	D

【0099】表1および表2に示す結果から明らかなように、実施例1～7では、いずれも、焼結体に部分的な高密度化が発生しておらず、密度が均一であり、均質で焼結欠陥のない高品質、高寸法精度の焼結体が得られるという効果が確認された。特に、断熱材を用いて放電プラズマ焼結した実施例1～6は、この効果が特に高い。

【0100】これに対し、比較例1、2では、ハイドロキシアパタイトの透明化された部分（高密度部分）が成形パンチの押圧面付近等に偏在しており、焼結体の密度が不均一であることがわかった。さらに、この密度のバラツキが原因で、クラック等の焼結欠陥が発生しているものがあつた。また、焼結体の寸法精度も、各実施例に比べ低いものであつた。

【0101】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、密度が均一で均質な焼結体、特にクラック等の焼結欠陥が※50

※少なく、高品質の焼結体を得ることができる。さらに、得られた焼結体の寸法精度も高い。

【0102】そして、断熱材を用いて焼結を行うことより、局所的な高温化が防止されるので、このような効果がより顕著となる。

【0103】また、このような効果は、製造する焼結体が長尺物である場合に、特に有効である。

【0104】また、本発明によれば、焼結に先立ち、粉体材料を加圧して圧粉体としておくため、焼結時の加圧の圧力を低くすることができ、放電プラズマ焼結装置の負担を軽減することができる。また、従来、放電プラズマ焼結が不可能または困難であつた材料や放電プラズマ焼結の焼結条件に厳しい制約を受ける材料（例えば窒化物系セラミックス、硼化物系セラミックス、フッ化物系セラミックス）でも、焼結体を製造すること、特に容易に製造することができる。



13

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の焼結体の製造方法の実施形態を示す工程図である。

【図2】本発明に用いられる放電プラズマ焼結用型の主要部の一例を示す縦断面図である。

【図3】本発明に用いられる放電プラズマ焼結装置の構成例を示す概略図である。

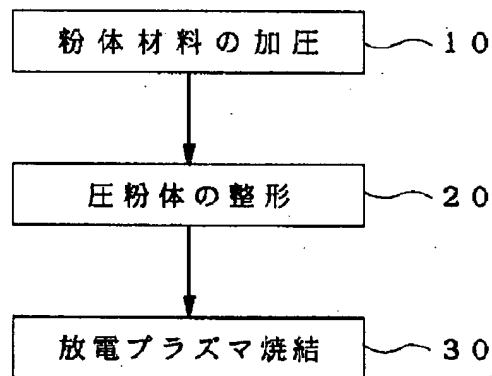
【図4】従来の放電プラズマ焼結用型を示す断面図である。

## 【符号の説明】

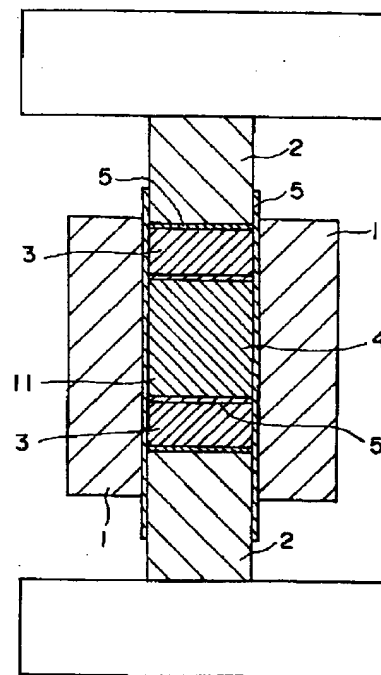
1 成形ダイ  
11 材料装入部  
2 成形パンチ  
3 断熱材  
4 圧粉体

5 カーボンシート  
7 放電プラズマ焼結装置  
71 制御部  
72 焼結用電源  
73 加圧駆動機構  
74、75 加圧ラム  
76 真空チャンバー  
77 真空ポンプ  
10 粉体材料の加圧工程  
20 圧粉体の整形工程  
30 放電プラズマ焼結工程  
100 成形ダイ  
200 成形パンチ  
400 被焼結材料

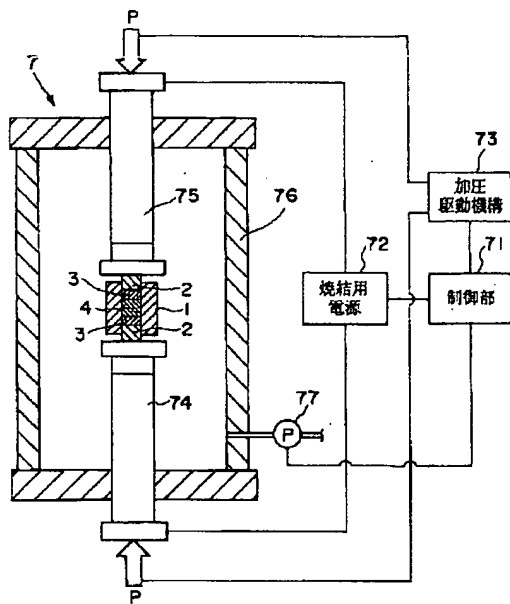
【図1】



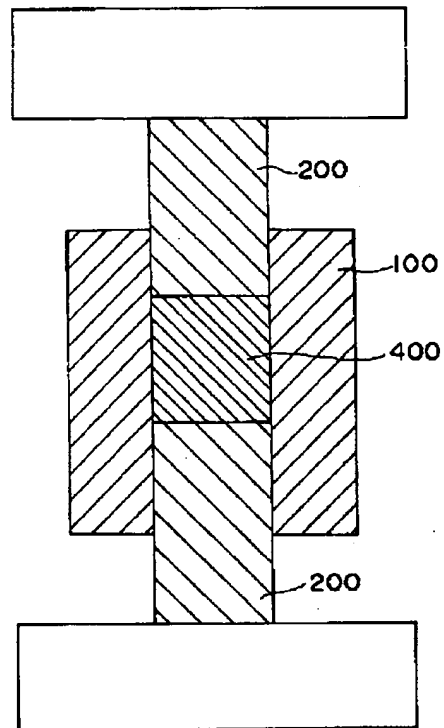
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 平出 恒男  
東京都板橋区前野町2丁目36番9号 旭光  
学工業株式会社内

Fターム(参考) 4G054 BE02 BE07

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.